

# ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

BEST AVAILABLE COPY

Publication number: JP2001254076

Publication date: 2001-09-18

Inventor: SHIROTA YASUHIKO

Applicant: SHIROTA YASUHIKO

Classification:

- international: C09K11/06; H05B33/14; H05B33/22; C07D271/10;  
C09K11/06; H05B33/14; H05B33/22; C07D271/00;  
(IPC1-7): C07D271/10; C09K11/06; H05B33/14;  
H05B33/22

- european:

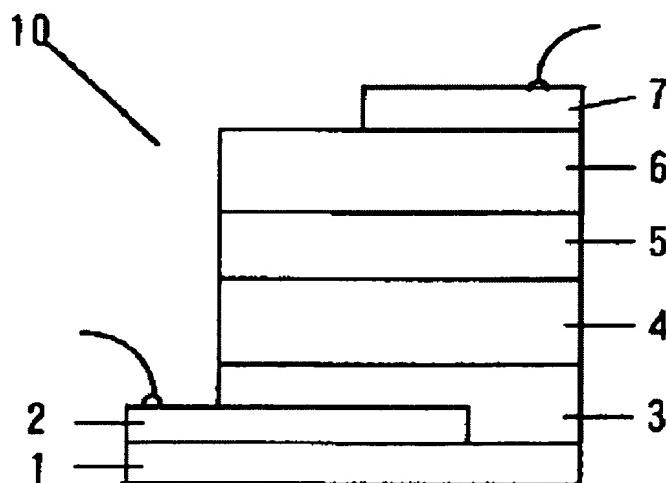
Application number: JP20000066185 20000310

Priority number(s): JP20000066185 20000310

[Report a data error here](#)

## Abstract of JP2001254076

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a novel organic EL(electroluminescence) element which has a high luminescence brightness, luminescence efficiency and quantum efficiency and an excellent heat resistance and durability by using a novel luminescence material. **SOLUTION:** The organic EL element is equipped with a base plate, an ITO transparent electrode, a luminescent layer and a back electrode which are successively laminated in this order. Here, the luminescent layer consists of a novel organic compound wherein a diarylaminophenyl group and a dimesitylboryl group are introduced into a thiophene or an oligothiophene skeleton. A hole injection layer and a hole transport layer may be positioned between the ITO transparent electrode and the luminescent layer, and an electron transport layer may be positioned between the luminescent layer and the back electrode to improve the luminescence brightness and the luminescence efficiency.



## (書誌+要約+請求の範囲)

- (19)【発行国】日本国特許庁(JP)  
(12)【公報種別】公開特許公報(A)  
(11)【公開番号】特開2001-254076(P2001-254076A)  
(43)【公開日】平成13年9月18日(2001. 9. 18)  
(54)【発明の名称】エレクトロルミネッセンス素子  
(51)【国際特許分類第7版】

C09K 11/06 660  
690  
H05B 33/14  
33/22

// C07D271/10

## 【FI】

C09K 11/06 660  
690  
H05B 33/14 B  
33/22 B  
D  
C07D271/10

## 【審査請求】未請求

【請求項の数】8

【出願形態】OL

【全頁数】9

(21)【出願番号】特願2000-66185(P2000-66185)

(22)【出願日】平成12年3月10日(2000. 3. 10)

(71)【出願人】

【識別番号】592212283

【氏名又は名称】城田 靖彦

【住所又は居所】大阪府豊中市大黒町3丁目5番7号

(72)【発明者】

【氏名】城田 靖彦

【住所又は居所】大阪府豊中市大黒町3-5-7

【テーマコード(参考)】

3K007

4C056

## 【Fターム(参考)】

3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB11 AB14 CA01 CB01 DA01 DB03 EB00  
4C056 AA01 AB02 AC07 AD01 AE03 FA13 FC01

## (57)【要約】

【課題】新規な発光材料を用い、高い発光輝度、発光効率および量子効率を有するとともに、耐熱性や耐久性にも優れた新規な有機EL素子を提供する。

【解決手段】本発明の有機EL素子は、基板と、ITO透明電極と、発光層と、背面電極とを具え、これらがこの順に積層されて構成されている。そして、前記発光層が、チオフェンあるいはオリゴチオフェン骨格にジアリールアミノフェニル基とジメチルボリル基を導入した新規有機化合物で構成されていることを特徴とする。なお、発光輝度・発光効率を向上させるために、前記ITO透明電極と発光層の間に正孔注入層ならびに正孔輸送層、および、発光層と背面電極との間に電子輸送層を具える場合もある。

**【特許請求の範囲】**

- 【請求項1】チオフェンあるいはオリゴチオフェン骨格にジアリールアミノフェニル基とジメシチルボリル基を導入したエレクトロルミネッセンス素子用新規発光材料。
- 【請求項2】基板と、ITO透明電極と、発光層と、背面電極とを具え、これらがこの順に積層されてなるエレクトロルミネッセンス素子であって、前記発光層が請求項1に記載の有機化合物から構成されていることを特徴とするエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項3】前記ITO透明電極と発光層との間に正孔注入層を具える、請求項2に記載のエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項4】前記正孔注入層と発光層との間に正孔輸送層を具える、請求項3に記載のエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項5】前記発光層と背面電極との間に電子輸送層を具える、請求項2～4に記載のエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項6】前記正孔注入層が、4, 4', 4"-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス(2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス[ビフェニル-2-イル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス[ビフェニル-3-イル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス[ビフェニル-4-イル(3-メチルフェニル)アミノ]トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス[9, 9-ジメチル-2-フルオレニル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミンなる有機化合物のいずれか一つから構成されていることを特徴とする、請求項3～5に記載のエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項7】前期正孔輸送層が、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジ(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジ(ビフェニル-2-イル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジ(ビフェニル-3-イル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン、N, N'-ジ(ビフェニル-4-イル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン、N, N'-ビス(9, 9-ジメチル-2-フルオレニル)-N, N'-ジフェニル-9, 9-ジメチルフルオレン-2, 7-ジアミン、1, 3, 5-トリス[4-(4-メチルフェニルフェニルアミノ)フェニル]ベンゼン、トリ[メターフェニル-4-イル]アミン、トリ[オルトターフェニル-4-イル]アミン、トリ[パラターフェニル-4-イル]アミン、あるいは、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼンなる有機化合物のいずれか一つから構成されていることを特徴とする、請求項4あるいは5に記載のエレクトロルミネッセンス素子。
- 【請求項8】前記電子輸送層が、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム、1, 3, 5-トリス(4-ターシャリーブチルフェニル-1, 3, 4-オキサジアゾリル)ベンゼンあるいは1, 3, 5-トリス[5-(ジメシチルボリル)-2-チエニル]ベンゼンなる有機化合物のいずれか一つから構成されていることを特徴とする、請求項5に記載のエレクトロルミネッセンス素子。

## 詳細な説明

### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、さらに詳しくは、フルカラー・フラットパネルディスプレイなどに好適に使用することのできるエレクトロルミネッセンス素子に関する。

#### 【0002】

【従来の技術】有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、略して「有機EL素子」と呼ぶことがある)は、フルカラー・フラットパネルディスプレイへの応用が期待されている。フルカラーあるいはマルチカラーを実現するためには、赤、緑および青色発光を基本として、様々な発光色を示す発光材料の創出が1つの重要な研究課題となっている。

【0003】高輝度・高効率の発光を得るためにには、発光材料として用いる有機分子の蛍光量子収率が高いことが求められる。

【0004】また、有機EL素子を実用化するうえで、素子寿命の向上も重要な課題であり、このためには、用いる材料がピンホールのない均一な薄膜を形成できること、ならびにモルフォロジー安定性に優れることが要求されている。

【0005】さらに、発光材料の長期的劣化を抑制するためには、発光材料となる材料が電気化学的安定性に優れることが望まれる。すなわち、電気化学的1電子酸化および1電子還元過程が可逆的で、生成する1電子酸化種(ラジカルカチオン)および1電子還元種(ラジカルアニオン)が安定であることが望まれる。

#### 【0006】

【発明が解決しようとする課題】上述したように、フルカラーあるいはマルチカラーを実現するためには、赤、緑および青色発光を基本として、様々な発光色を示す発光材料の創出が必要となるが、高い蛍光量子収率を有する発光材料の報告例は少ない。

【0007】報告されている発光材料のほとんどは、モルフォロジー安定性に乏しいものであり、このため動作安定性および素子寿命特性に優れる有機EL素子を実現することができなかつた。

【0008】また、電気化学的安定性に優れる発光材料が開発されていなかつたため、発光材料の長期的劣化を抑制することができず、耐久性有機EL素子を開発できないのが現状であった。

【0009】本発明は、高い発光輝度、発光効率および量子収率を有するとともに、耐熱性や耐久性に優れる新規な有機EL素子を提供することを目的とする。

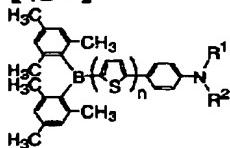
#### 【0010】

【課題を解決するための手段】本発明の有機EL素子は、基板と、ITO透明電極と、発光層と、背面電極とを具え、これらがこの順に積層されて構成されている。そして、前記発光層が、チオフェンあるいはオリゴチオフェン骨格にジアリールアミノフェニル基とジメシチルボリル基を導入した有機EL素子用新規発光性アモルファス分子材料で構成されていることを特徴とする。なお、発光輝度・発光効率を向上させるために、前記ITO透明電極と発光層の間に正孔注入層ならびに正孔輸送層、および、発光層と背面電極との間に電子輸送層を具える場合もある。

【0011】チオフェンあるいはオリゴチオフェン骨格にジアリールアミノフェニル基とジメシチルボリル基を導入した有機EL素子用新規発光性アモルファス分子材料は、本発明者が設計・合成した新規有機化合物群であり、以下のような一般式で表される構造を有している。

#### 【0012】

##### 【化1】



【0013】[化1]において、nは1以上の整数である。また、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>は、フェニル基、トルイル基、ビフェニル基、フルオレニル基、あるいはフェナントリル基のいずれか一つから構成されている。

【0014】[化1]で示される化合物群は、比較的高い蛍光量子収率を有するとともに、電気化学的安定性に優れており、1電子酸化過程および1電子還元過程はともに可逆的である。

【0015】また、[化1]で示される化合物群は、その融液を冷却、あるいは真空蒸着することにより、均一・透明で、室温以上で安定なアモルファスガラスを容易に形成し、それらのアモルファス状態は、長期間にわたって極めて安定である。

#### 【0016】

【発明の実施の形態】本発明を発明の実施の形態に基づいて詳細に説明する。

【0017】図1は、本発明の有機EL素子構成の一例を示す概略図である。以下、図1に示すEL素子構成に

基づき、本発明を詳細に説明する。図1に示す有機EL素子10は、ガラス基板1と、ITO透明電極2と、正孔注入層3と、正孔輸送層4と、発光層5と、電子輸送層6と、背面電極7としてのMgAg電極とを具えている。そして、これらがこの順に積層されている。

【0018】本発明にしたがつた図1に示すEL素子10の発光層5は、上記したように[化1]で示される化合物群のいずれか一つから構成されていることが必要である。

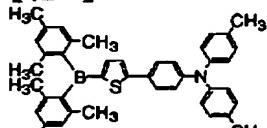
【0019】上記のように、[化1]で示される化合物群は本発明者が設計・合成した新規有機化合物である。

以下、[化1]で示される化合物群のうち、nが1、R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>がトルイル基である2-[4-[ビス(4-メチルフェニル)アミノ]フェニル]-5-(ジメシチルボリル)チオフェン(以下、略して「MAMB-1T」と呼ぶことがある)の合成例を示す。

【0020】MAMB-1Tは、以下のような構造を有している。

【0021】

【化2】



MAMB-1T

【0022】上記MAMB-1Tは、次のようにして得る。ビス(4-メチルフェニル)[4-(2-チエニル)フェニル]アミン1.5 gを含むテトラヒドロフラン溶液に、n-ブチルリチウム2.5mlを添加し、氷冷しながら約30分攪拌した。その後、ジメシチルボロンフロリド1.12gを含むテトラヒドロフラン溶液を加え、室温で14時間攪拌した。反応物をトルエンで抽出し水洗した後、溶媒を留去し、得られた生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開溶媒:トルエン:ヘキサン=1:4)により分離し、アセトン:エタノール(1:1)からの再結晶により精製した。黄色固体。収量1.33g。収率52%。

【0023】MAMB-1Tは、テトラヒドロフラン希薄溶液において、0.58という比較的高い蛍光量子収率を有している。

【0024】MAMB-1Tは、その溶融状態を冷却、あるいは真空蒸着することにより、均一・透明で、室温以上で安定なアモルファスガラスを形成する。また、そのアモルファス状態は、長期間にわたって極めて安定である。ガラス転移温度は84°Cである。

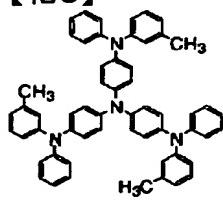
【0025】また、MAMB-1Tは、第1酸化電位および第1還元電位が、テトラヒドロフラン溶液においてそれぞれ0.62 V (vs Ag/Ag<sup>+</sup>)および-2.13 V (vs Ag/Ag<sup>+</sup>)であり、1電子酸化状態および1電子還元状態がともに電気化学的に非常に安定である。

【0026】正孔注入層3を構成する材料については、4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下、略して「m-MTADATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス(1-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下、略して「1-TNATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス(2-ナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(以下、略して「2-TNATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス[ビフェニル-2-イル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(以下、略して「o-PTDATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス[ビフェニル-3-イル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(以下、略して「m-PTDATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス[ビフェニル-4-イル(3-メチルフェニル)アミノ]トリフェニルアミン(以下、略して「p-PMTDATA」と呼ぶことがある)、4, 4', 4''-トリス[9, 9-ジメチル-2-フルオレニル(フェニル)アミノ]トリフェニルアミン(以下、略して「TFATA」と呼ぶことがある)なる有機化合物のいずれか一つから構成されていることが望ましい。

【0027】m-MTADATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0028】

【化3】



m-MTADATA

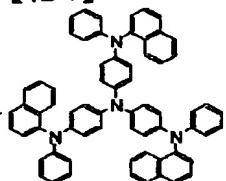
【0029】m-MTADATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-(3-メチルフェニル)アニリンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シ

リカゲルカラムクロマトグラフィー、THFから再結晶させてm-MTDATAを得る。

【0030】1-TNATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0031】

【化4】



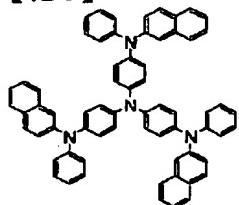
1-TNATA

【0032】1-TNATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-フェニル-1-ナフチルアミンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、ベンゼンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させて1-TNATAを得る。

【0033】2-TNATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0034】

【化5】



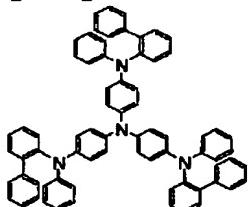
2-TNATA

【0035】2-TNATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-フェニル-2-ナフチルアミンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、ベンゼンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させて2-TNATAを得る。

【0036】o-PTDATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0037】

【化6】



o-PTDATA

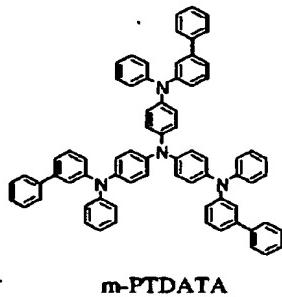
【0038】o-PTDATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-フェニル-2-ビフェニリルアミンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させてo-PTDATAを得る。

【0039】m-PTDATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0040】

【化7】

## BEST AVAILABLE COPY

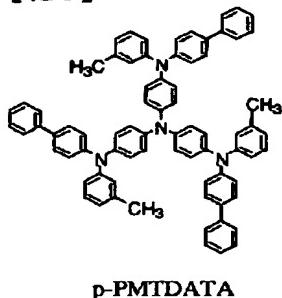


【0041】m-PTDATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-フェニル-3-ビフェニリルアミンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させてm-PTDATAを得る。

【0042】p-PMTDATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0043】

【化8】

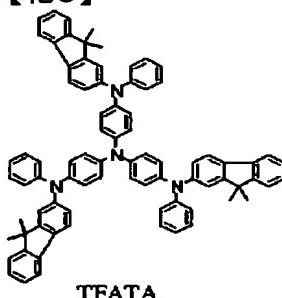


【0044】p-PMTDATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミンと、N-(3-メチルフェニル)-2-ビフェニリルアミンを、銅と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させてp-PMTDATAを得る。

【0045】TFATAは、本発明者が合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0046】

【化9】



【0047】TFATAは、次のようにして合成する。トリス(4-ヨードフェニル)アミン、N-フェニル-9,9-ジメチル-2-フルオレニルアミンを、炭酸カリウムと銅粉および18-クラウン-6の存在下において加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶させてTFATAを得る。

【0048】正孔注入層3としてm-MTADATA、1-TNATA、2-TNATA、o-PTDATA、m-PTDATA、p-PMTDATA、TFATAのうち、いずれか一つを用いることにより、ITO電極2から発光層5へ注入される正孔の数が増加し、駆動電圧を下げるとともに、発光層4の発光輝度を向上させることができる。

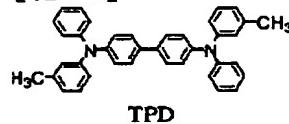
【0049】正孔輸送層4を構成する材料については、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(以下、略して「TPD」と呼ぶことがある)、N, N'-ジ(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(以下、略して「a-NPD」と呼ぶことがある)、N, N'-ジ(ビフェニル-2-イル)-N, N'-ジフェニル-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(以下、略して「BPD」と呼ぶことがある)、N, N'-ジ(ビフェニル-3-イル)-N, N'-ジフェニル-[1,

1' -ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(以下、略して'm-BPD'と呼ぶことがある)、N, N' -ジ(ビフェニル-4-イル)-N, N' -ジフェニル-[1, 1' -ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(以下、略して'p-BPD'と呼ぶことがある)、N, N' -ビス(9, 9-ジメチル-2-フルオレニル)-N, N' -ジフェニル-9, 9-ジメチルフルオレン-2, 7-ジアミン(以下、略して'PFFA'と呼ぶことがある)、1, 3, 5-トリス[4-(4-メチルフェニルフェニルアミノ)フェニル]ベンゼン(以下、略して'p-MTDAPB'と呼ぶことがある、トリ[オルトターフェニル-4-イル]アミン(以下、略して'o-TTA'と呼ぶことがある)、トリ[メタターフェニル-4-イル]アミン(以下、略して'm-TTA'と呼ぶことがある)、トリ[パラターフェニル-4-イル]アミン(以下、略して'p-TTA'と呼ぶことがある)、あるいは、1, 3, 5-トリス[N-(4-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼン(以下、略して'p-DPA-TDAB'と呼ぶことがある)なる有機化合物のいずれか一つから構成されていることが望ましい。

【0050】TPDは、正孔輸送材料として一般に知られている有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0051】

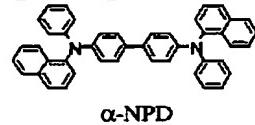
【化10】



【0052】 $\alpha$ -NPDは、正孔輸送材料として一般に知られている有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0053】

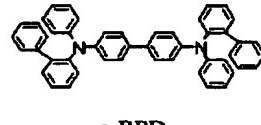
【化11】



【0054】 $o$ -BPDは、正孔輸送材料として一般に知られている有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0055】

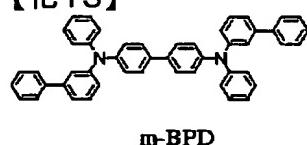
【化12】



【0056】 $m$ -BPDは、正孔輸送材料として一般に知られている有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0057】

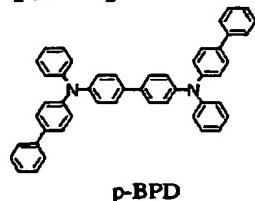
【化13】



【0058】 $p$ -BPDは、正孔輸送材料として一般に知られている有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0059】

【化14】



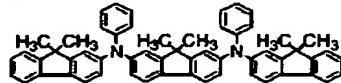
【0060】PFFAは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有し

## BEST AVAILABLE COPY

ている。

【0061】

【化15】



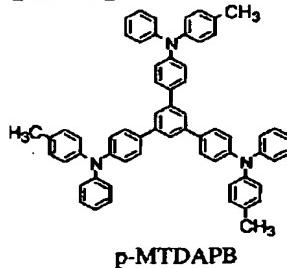
PFFA

【0062】PFFAは、以下のようにして合成する。2, 7-ジヨード-9, 9-ジメチルフルオレンとN-フェニル-9, 9-ジメチル-2-フルオレニルアミンを、炭酸カリウム、銅粉および18-クラウン-6の存在下で、メシチレンを溶媒として混合し、窒素雰囲気下、170°Cで10時間加熱攪拌した。次いで、溶媒を留去した後、シリカゲルカラムクロマトグラフィおよびトルエンとヘキサンの混合溶媒からの再結晶することにより得る。

【0063】p-MTDAPBは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0064】

【化16】



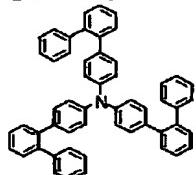
p-MTDAPB

【0065】p-MTDAPBは以下のようにして合成する。1, 3, 5-トリス(4-ヨードフェニル)ベンゼンと、N-フェニル-4-メチルアニリンを、炭酸カリウム、銅粉および18-クラウン-6の存在下で加熱反応させる。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶することにより、p-MTDAPBを合成する。

【0066】o-TTAは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0067】

【化17】



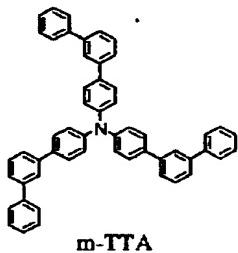
o-TTA

【0068】o-TTAは以下のようにして合成する。Mgを含むテトラヒドロフランに、氷冷下で2-プロモビフェニルのテトラヒドロフラン溶液を滴下混合させてグリニヤール試薬を得る。次いで、この試薬を、トリス(4-ヨードフェニル)アミン、および、1, 3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパンニッケル(II)クロリドを溶解して得たテトラヒドロフラン溶液中に滴下し、加熱攪拌する。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーおよびトルエンとヘキサンの混合溶媒からの再結晶により精製して得る。

【0069】m-TTAは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0070】

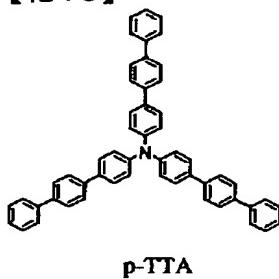
【化18】



【0071】m-TTAは以下のようにして合成する。Mgを含むテトラヒドロフランに、氷冷下で3-ブロモビフェニルのテトラヒドロフラン溶液を滴下混合させてグリニヤール試薬を得る。次いで、この試薬を、トリス(4-ヨードフェニル)アミン、および、1, 3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパンニッケル(II)クロリドを溶解して得たテトラヒドロフラン溶液中に滴下し、加熱攪拌する。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーおよびトルエンとヘキサンの混合溶媒からの再結晶により精製して得る。

【0072】p-TTAは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

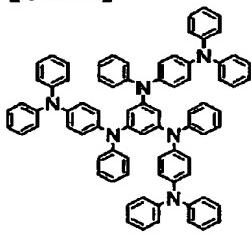
【0073】  
【化19】



【0074】p-TTAは以下のようにして合成する。Mgを含むテトラヒドロフランに、氷冷下で4-ブロモビフェニルのテトラヒドロフラン溶液を滴下混合させてグリニヤール試薬を得る。次いで、この試薬を、トリス(4-ヨードフェニル)アミン、および、1, 3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパンニッケル(II)クロリドを溶解して得たテトラヒドロフラン溶液中に滴下し、加熱攪拌する。その後、アルミナカラムクロマトグラフィーおよびトルエンからの再結晶により精製して得る。

【0075】p-DPA-TDABは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0076】  
【化20】



【0077】p-DPA-TDABは以下のようにして合成する。4-ニトロアニリンとヨードベンゼンとを、1, 2, 4-トリクロロベンゼン中において、銅粉と炭酸カリウムと18-クラウン-6の存在下で加熱反応させる。次いで、アルミナカラムクロマトグラフィー、テトラヒドロフランおよびエタノールの混合溶媒から再結晶させて、ニトロトリフェニルアミンを得る。次いで、ニトロトリフェニルアミンを塩化スズニ水和物および塩酸と加熱反応させて、4-アミントリフェニルアミンを得る。

【0078】次いで、4-ニトロトリフェニルアミンとフロログルシノールを、ヨウ素の存在下で加熱反応させる。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、ベンゼンおよびヘキサンの混合溶媒から再結晶させて、1, 3, 5-トリス(4-ジフェニルアミノフェニルアミノ)ベンゼンを得る。次いで、1, 3, 5-トリス(4-ジフェニルアミノフェニルアミノ)ベンゼンとヨードベンゼンを、炭酸カリウム、銅粉、18-クラウン-6の存在下で加熱反応させる。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、テトラヒドロフランおよびエタノールの混合溶媒から再結晶させて、p-DPA-TDABを得る。

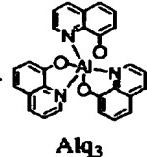
【0079】電子輸送層6を構成する材料については、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(以下、略して

「Alq<sub>3</sub>」と呼ぶことがある)、1, 3, 5-トリス(4-ターシャリーブチルフェニル-1, 3, 4-オキサジアゾリル)ベンゼン(以下、略して「TPOB」と呼ぶことがある)あるいは1, 3, 5-トリス[5-(ジメチルボリル)-2-チエニル]ベンゼン(以下、略して「TMB-TB」と呼ぶことがある)なる有機化合物のいずれか一つから構成されていることが望ましい。

【0080】Alq<sub>3</sub>は、電子輸送性緑色発光材料として一般に知られている化合物であり、以下のような構造を有している。

【0081】

【化21】

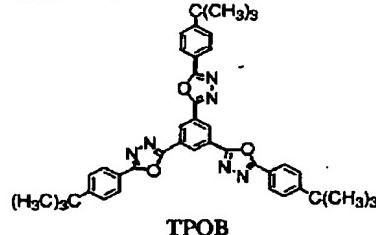


Alq<sub>3</sub>

【0082】TPOBは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0083】

【化22】



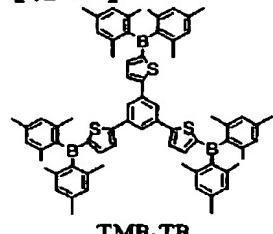
TPOB

【0084】TPOBは以下のようにして得る。1, 3, 5-トリス(N' -パラ-ターシャリーブチルベンゾカルボビドラジド)ベンゼンをオキシ塩化リン中で還流する。次いでシリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶することにより得る。

【0085】TMB-TBは、本発明者が設計・合成して作り出した新規有機化合物であり、以下のような構造を有している。

【0086】

【化23】



TMB-TB

【0087】TMB-TBは以下のようにして得る。1, 3, 5-トリ(2' -チエニル)ベンゼンを含むTHF溶液に、氷冷下でn-ブチルリチウムのヘキサン溶液を滴下した後、ジメチルボロンフロリドを含むTHF溶液を滴下する。次いで、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、トルエンとヘキサンの混合溶媒から再結晶することにより得る。

【0088】図1に示すような正孔注入層3、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層6、背面電極7は、真空蒸着法によって形成する。なお、基板には、図1に示すようなガラス基板のほかに、PETフィルムなどを使用することも可能である。また、背面電極についても、MgAg電極のほかに、Ca、Al、AlLiなどを使用することができる。

【0089】

【実施例】以下、実施例により、本発明のEL素子の具体例を示す。

(実施例)本実施例で作製した有機EL素子は、ガラス基板1、ITO透明電極2、正孔注入層3、発光層5、電子輸送層6、背面電極7を具え、これらがこの順で積層されている。ITO透明電極2が形成されたガラス基板1を用い、このITO透明電極2上に、真空蒸着によってm-MTDATAから構成される厚さ300オングストロームの正孔注入層3を、その一部がガラス基板1の表面に接触するように形成した。次いで、正孔注入層3上に、発光層5として、MAMB-1Tを真空蒸着により厚さ200オングストロームに形成した。次いで、

発光層5上に、電子輸送層6としてAlq<sub>3</sub>を真空蒸着により厚さ300オングストロームに形成した。その後、電子輸送層6上に、背面電極7としてMgとAgの合金(体積比10:1)よりなる面積4平方ミリメートルの電極を作製して、本実施例のEL素子10を作製した。

【0090】この有機EL素子について、作製後直ちに室温大気下において電流・輝度およびELスペクトルの測定を行った。

【0091】図2に示すように、得られたELスペクトルは、MAMB-1Tからの青緑色の蛍光に帰属され、MAMB-1Tが青緑色発光材料、m-MTDATAが正孔輸送材料、Alq<sub>3</sub>が電子輸送材料として機能していることがわかる。

【0092】本実施例における有機EL素子の電圧-輝度特性、電圧-電流密度特性を図3に示す。ITO透明電極側を正として、3V以上の電圧を印加することにより青緑色発光が確認された。最高輝度は17Vで12,500 cd m<sup>-2</sup>、300 cd m<sup>-2</sup>発光時における発光効率および量子効率は1.1 lm W<sup>-1</sup>である。したがって、発光層5としてMAMB-1Tを用いることにより、発光輝度、発光効率、量子効率の有機EL素子を開発することができた。さらに、正孔注入層3、発光層5、および電子輸送層6を構成する有機化合物の高いガラス転移温度ならびにモルフォロジー安定性に基づき、本発明の有機EL素子は、耐熱性および耐久性にも優れる。

【0093】以上、具体例を挙げながら発明の実施の形態に基づいて本発明を詳細に説明してきたが、本発明は上記内容に限定されるものではなく、本発明の範疇を逸脱しない限りにおいて、あらゆる変形や変更が可能である。

【0094】

【発明の効果】本発明によれば、発光輝度、発光効率および量子効率に優れる有機EL素子を得ることができる。また、正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層に使用する有機化合物に起因して高い耐熱性と耐久性を具える。したがって、各種デバイスにおける発光素子として十分使用に耐えうることができる。

## 図の説明

### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL素子構成の一例を示す概略図である。

【図2】本発明の有機EL素子の発光スペクトルの一例を示すグラフである。

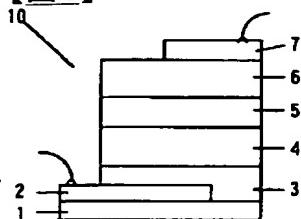
【図3】本発明の有機EL素子の電圧－輝度特性、電圧－電流密度特性の一例を示すグラフである。

### 【符号の説明】

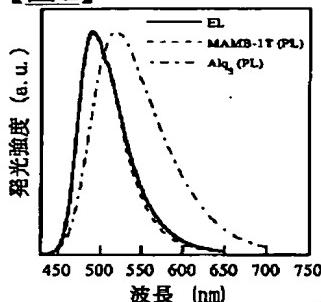
- 1 ガラス基板
- 2 ITO透明電極
- 3 正孔注入層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 背面電極
- 10 EL素子

## 図面

【図1】



【図2】



【図3】

